

## РАСЧЕТНАЯ ОЦЕНКА И АНАЛИЗ АКТИВАЦИИ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ЛЕГКОВОДНЫХ РЕАКТОРОВ

**А.В. Корзунин**

*Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ, г. Обнинск*



Оценена и проанализирована временная зависимость удельных активности и мощности гамма-квантов продуктов активации легких элементов для четырех вариантов состава конструкционных материалов ТВС легководных реакторов на основе циркония. Оценено влияние содержания кобальта в исследуемых материалах. Показаны преимущества очистки циркония от примесей после облучения.

**Ключевые слова:** конструкционные материалы ТВС, активация конструкционных материалов, легководные реакторы.

**Key words:** structural materials for manufacturing fuel elements, activation of structural materials, light water reactors.

### ВВЕДЕНИЕ

Значительную долю материалов, из которых состоит ядерный реактор, представляют конструкционные материалы. Изучение изменения ядерно-физических свойств этих материалов является важным для обращения с ними. Существует ряд предпосылок для переработки и повторного использования конструкционных материалов, например,

- снижение объемов материалов, непригодных для использования в областях человеческой деятельности, не связанных с ядерными технологиями;
- возможное снижение стоимости конструкционных материалов;
- снижение затрат и рисков, связанных с временным хранением или захоронением отходов.

Работа посвящена изучению аспектов активации конструкционных материалов на основе циркония, которые являются конструкционными материалами оболочек твэлов реактора типа PWR или ВВЭР.

Целью исследования является оценка и анализ изменения ядерно-физических характеристик этих материалов в зависимости от времени. Для этого проведен анализ путей их активации, смоделировано изменение изотопного состава вследствие радиоактивного распада и ядерных взаимодействий.

### ОБ АКТИВАЦИИ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ЛЕГКОВОДНЫХ РЕАКТОРОВ

В рудах, которые добываются для последующего изготовления из них оболочек твэлов, помимо циркония содержится ряд других элементов, в том числе уран и торий. Доли этих элементов попадают в конструкционные детали при изготовле-

нии. Кроме того, активация происходит путем переноса уже радиоактивных, активируемых или делящихся изотопов со стороны топлива или теплоносителя. Другим видом активации является активация легких ядер конструкционных материалов. В данном исследовании предлагается рассмотрение зависимости активации от состава легких ядер в оболочках ТВЭЛОВ.

### **ОПИСАНИЕ МОДЕЛИ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ИЗМЕНЕНИЯ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ**

Моделирование изменения изотопного состава проводилось средствами программного комплекса SCALE 5 [1]. Подготовка констант ядерных реакций и расчет изменения изотопного состава осуществляются путем использования управляющей последовательности ORIGEN-ARP. Модуль ARP (**A**utomated **R**apid **P**rocessing) использует алгоритм, который позволяет создание библиотек сечений для программы ORIGEN-S за счет интерполяции между библиотеками сечений, предварительно созданных программой SAS2.

### **ОПИСАНИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ**

Существенные неопределенности в обогащении топлива, непостоянство мощности энерговыделения, различное время облучения сборок, а также некоторая неопределенность в составе материалов приводят к отсутствию актуальности в высокой точности расчетных параметров. Это ведет к погрешности общей оценки, предлагаемой в данной работе, относительно реальных значений вплоть до порядка величины.

Конструкционные материалы на основе циркония, используемые в ядерной энергетике отличаются составом химических элементов. Таким образом, внутренние параметры материала определяются содержанием в нем тех или иных (первоначально стабильных) изотопов. Была предпринята попытка провести расчеты для широкого спектра материалов. Приближенные содержания легирующих химических элементов в некоторых материалах, которые используются сейчас и предлагаются для будущего использования в активных зонах реактора этого типа, представлены в табл. 1. Значения близки к приведенным в [2]. Данное приближение представляется адекватным для оценок, производимых в данной работе.

Таблица 1

#### **Содержание легирующих элементов в исследуемых сплавах**

Вариант	Содержание элемента (масс.), %				
	Nb	Sn	Fe	Cr	Ni
Zr+Nb	1	–	–	–	–
Zr+Nb+Sn+Fe+Ni	0.1	0.1	0.1	–	0.1
Zr+Nb+Sn+Fe	1	1	0.1	–	–
Zr+Sn+Fe+Cr+Ni	–	1	0.1	0.1	0.1

Кроме элементов, приведенных в табл. 1, в реальных сплавах присутствуют С, О, N, а также ряд примесных элементов [2]. Содержание этих элементов достаточно низко, а вот содержание кобальта представляет определенную опасность, поэтому ниже приводятся результаты расчетов по вкладу кобальта в оцениваемые величины. При этом надо понимать, что этот элемент не несет полезную (легирующую) функцию, а является примесным, и как показало исследование, его содержание необходимо поддерживать на низком уровне.

Таблица 2

**Внешние параметры**

Параметр	Значение
Тепловая мощность реактора, МВт	3000
Обогащение топлива, %	3.3
Загрузка реактора ураном, кг	75000
Плотность замедлителя, г/см <sup>3</sup>	1
Время облучения, лет	3

Параметры, определяющие воздействие на сплав внешней среды представлены в табл.2 [3]. Все параметры не зависят от пространственных координат. Использовалась библиотека констант, подготовленная для ВВЭР-1000.

**РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ**

Результаты расчетов удельной радиоактивности для исследуемых вариантов показали, что в течение облучения активность растет до значения  $\sim 10^{11}$  кБк/кг, после окончания облучения она начинает уменьшаться. Сравнение снижения активности для вариантов представлено на рис. 1. Удельная активность материалов с 1%-ным содержанием ниобия остается практически постоянной ( $\sim 10^6$  кБк/кг) начиная со 100 лет выдержки и на десятки тысяч лет вперед. Эта активность обусловлена <sup>94</sup>Nb. Что касается материалов без высокого содержания ниобия, их активность спадает всего на один-два порядка величины от 100 до 1000 лет выдержки. Обращает на себя внимание вклад в активность кобальта – если его содержание составляет  $\sim 0.01\%$ , то продукты его активации являются определяющими для исследуемых материалов в период от трех до 30-ти лет выдержки.

С учетом высокой проникающей способности гамма-квантов мощность их излучения имеет важное значение для дозы внешнего облучения, получаемой при работе с материалом. Эволюция этой величины для исследуемого материала представлена на рис. 2. Здесь выделяется состав Zr+Sn+Fe+Cr+Ni, мощность гамма-кван-

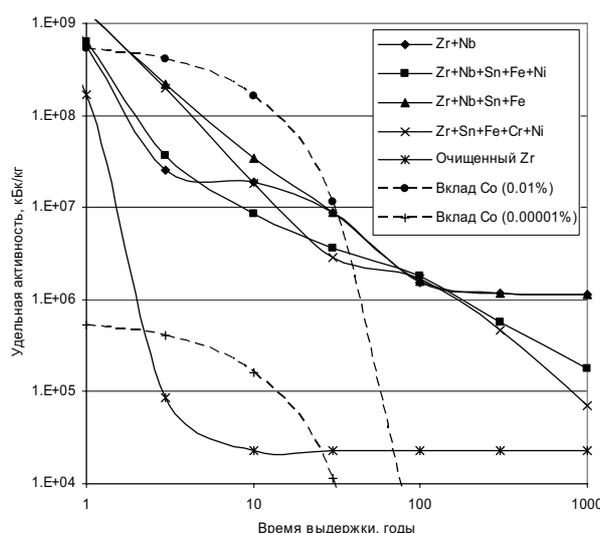


Рис. 1. Зависимость удельной активности от времени

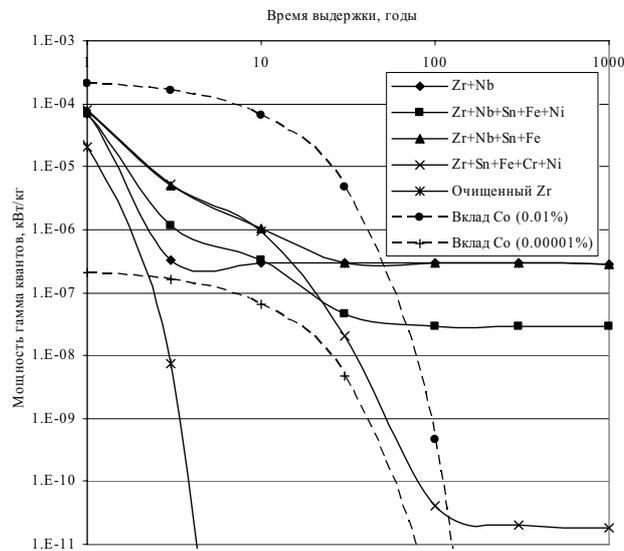


Рис. 2. Зависимость удельной мощности гамма-квантов от времени

тов которого в асимптотике в  $10^3$ – $10^4$  раза ниже мощности остальных. Это обусловлено отсутствием ниобия в начальном составе параметров материала, продукт активации которого  $^{94}\text{Nb}$  поддерживает мощность гамма-квантов  $\sim 10^6$  кБк/кг десятки тысяч лет. Существенный вклад в мощность гамма-излучения может давать продукт активации  $^{60}\text{Co}$ . При высоком содержании он является изотопом, определяющим мощность гамма-излучения вплоть до  $\sim 50$  лет выдержки. Чтобы нивелировать влияние кобальта, необходимо снизить его содержание до порядка  $1\text{E}-5\%$  ( $0.1$  ppm) (рис. 1, 2).

Цирконий – это основной элемент этих материалов, и очищение циркония от других элементов после облучения может быть полезным. Было получено, что удельная активность циркония в этих материалах уменьшается от  $10^{10}$  до  $10^4$  кБк/кг по порядку величины за время около 10-ти лет выдержки. Но эта активность остается постоянной более миллиона лет. Отношение удельной активности «загрязненного» циркония к удельной активности очищенного может принимать значение более тысячи (рис. 1). Примечательным является тот факт, что для циркония, очищенного от остальных элементов, мощность гамма-квантов полностью спадает на промежутке от трех до 10-ти лет выдержки. Согласно используемым ядерным данным, распад изотопа  $^{93}\text{Zr}$ , определяющий асимптотическую активность циркония, не сопровождается существенным гамма-излучением. Следовательно, существует такой интервал времени выдержки менее 10 лет, после которого цирконий не будет обладать значимой гамма-активностью, что существенно облегчает работу с ним.

Следует отметить, что на рассматриваемом интервале времени выдержки после очистки циркония от других элементов его активность и мощность гамма-квантов будут расти вследствие перехода изотопов циркония в нестабильные изотопы других элементов. Однако эта активность возрастет лишь в несколько раз. Мощность гамма-квантов возрастет также в разы для интервала времени выдержки  $\sim 1$ – $10$  лет. В асимптотике мощность гамма-квантов возрастет за счет распада изотопа  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ , продукта распада  $^{93}\text{Zr}$ . Энергия гамма-квантов при распаде  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  в  $^{93}\text{Nb}$  невысока, и в максимуме после времени выдержки  $\sim 10$  лет мощность гамма-квантов такого материала может достигнуть лишь значений порядка  $10^{-12}$  кВт/кг.

## ВЫВОДЫ

Была проведена оценка таких характеристик облученных оболочек твэлов, как удельная активность и мощность гамма-квантов от продуктов активации легких элементов. Исследование показало, что не продукты активации циркония являются главными вкладчиками в активность материала, а, например, продукт активации стабильного изотопа  $^{93}\text{Nb}$ , изотоп  $^{94}\text{Nb}$ , который поддерживает активность материала на уровне  $\sim 10^6$  кБк/кг десятки тысяч лет.

Существуют следующие нормы для данного вида материалов: верхняя граница удельной активности материалов, применяемая в конкретных проектах по неограниченному использованию или неограниченному захоронению в ряде стран, изменяется от 0.1 кБк/кг до 5 кБк/кг [4,5]. Таким образом, радиоактивность сплавов после облучения слишком высока для того, чтобы использовать их в хозяйственной деятельности или захоранивать без ограничений даже после миллиона лет выдержки. То же справедливо и для очищенного циркония. Получено также, что активность циркония уменьшается в  $10^6$  раз за время около 10-ти лет выдержки. В то же время мощность гамма-квантов очищенного циркония значительно снижается на интервале от трех до 10-ти лет выдержки, что может положительно сказаться на обращении с ним.

Существенное влияние на радиационную опасность оказывает содержание кобальта в изготавливаемых материалах. Для того, чтобы вклад кобальта в оцениваемые величины перестал быть значимым, необходимо снизить его содержание до  $\sim 0.1$  ppm.

Был рассмотрен только один из видов активации. Необходимы дополнительные исследования по влиянию начального содержания делящихся изотопов в изготавливаемых оболочках. Активация оболочек твэлов за счет переноса может являться основным источником радиационной опасности данных конструкционных материалов при обращении с ними после переработки. Для того, чтобы этого избежать, может потребоваться комплекс мер, к которым, в частности, можно отнести эффективную очистку при переработке и повышение защищенности покрытий.

## Литература

1. SCALE 5, SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, RSICC, CCC-7252.
2. Конструкционные материалы ядерных реакторов: Учебник для вузов / Н.М. Бескорвайный, Б.А. Калинин, П.А. Платонов, И.И. Чернов. – М.: Энергоатомиздат, 1995. – С. 561.
3. Конструирование ядерных реакторов: Учебное пособие для вузов / И.Я. Емельянов, В.И. Мухан, В.И. Солонин; Под общ. ред. акад. Н.А. Доллежаля. – М.: Энергоиздат, 1982. – С. 56-82.
4. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Recycle and reuse of materials and components from waste streams of nuclear fuel cycle facilities. IAEA-TECDOC-1130, 2000.
5. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ): 2.6.1. Ионизирующее излучение, радиационная безопасность СП 2.6.1. 799-99. – М.: Минздрав России, 2000. – 98 с. (Гос.сан.эпид.нормирование Рос.Фед. Гос.сан.эпид. правила и нормативы).

Поступила в редакцию 18.04.2007

**УДК 623.454.86**

*Integrated Approach to Proliferation Risk Assessment Based on Multiple Objective Analysis Framework* \A.A. Andrianov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 9 pages, 4 tables, 6 illustrations. – References, 7 titles.

The approach to the assessment of proliferation risk using the methods of multi-criteria decision making and multi-objective optimization are presented. The approach allows taking into account the specifics features of the national nuclear infrastructure, and possible proliferator strategies (motivations, intentions, and capabilities). Simple examples of applying the approach are shown.

**УДК 621.039.543.4**

*On the Issues of Uranium Reprocessed from High Burnup Fuels* \A.I. Dyachenko, N.A. Balagurov, V.V. Artisyuk; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 9 pages, 5 tables, 6 illustrations. – References, 13 titles.

The present paper focuses on analysis of nuclide composition in spent fuel of VVER-1000 from the view point of uranium reprocessing. The consideration is given to even uranium isotopes compensation, savings of separate work units, associated saving of uranium resources and economics.

**УДК 621.039.84**

*Control Uniform Distribution of Plutonium by Fuel Pin Length BN-800* \M.I. Stasevich, E.V. Skachkov, V.V. Kadilin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 5 pages, 2 illustrations. – References, 4 titles.

In this paper, was considered a method of determining the mass of plutonium and getter (additive in the form of uranium metal) in a fragment of a fuel pin reactor BN-800 10 mm by mathematical modeling, the method based on measuring the intrinsic emission of granulated MOX fuel. There were researched the influence of the presence of a getter, the vibrations of the inner radius and thickness of the cladding, the determination of the mass of plutonium.

**УДК 621.039.548**

*Residual Resource Estimation of the Fuel Pins Cover of Austenitic Stainless Steel ChS-68 of the Reactor BN-600* \K.V. Miturev, I.I. Konovalov, V.V. Popov, S.M. Ganina; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 10 pages, 1 table, 7 illustrations. – References, 14 titles.

It have been done calculation of swelling austenitic stainless steel ЧС-68 and diameter profiles of fuel pins cladding from this steel, passed operation in an active zone of reactor BN-600, having reached the values of a damaging dose exceeding the regular in work. Comparison of calculations with the experimental data [1] received on irradiated fuel pins, has shown that at carrying out of calculations of a residual resource it is necessary to consider the ovality factor.

**УДК 621.039.53**

*Computational Analysis and Estimation of LWR Cladding Radioactivity* \A.V. Korzunin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 5 pages, 2 tables, 2 illustrations. – References, 5 titles.

Time evolution of specific radioactivity and gamma watts for four types of zirconium based structural materials light elements activation products were estimated. Some chemical elemental analysis was performed. The advantages of zirconium purification after irradiation were shown.

**УДК 621.039.37**

*Training for Faculty Training and Retraining INPE NRNU MEPhI* \V.V. Tkachenko, S.P. Saakyan; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 7 pages.

The history of the organization and formation of In-Services Training Department of the INPE NRNU MEPhI. The functioning of the faculty to train specialists for the nuclear industry of additional professional education programs. It is shown that the most popular are retraining programs in «Operation of Nuclear Power Plants», to maintain the skills of managers and specialists of NPP, as well as training in various areas of nuclear energy profile.